

УДК 535.2

ЗАТУХАНИЕ СВОБОДНОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ, ФОТОННОЕ ЭХО И СТИМУЛИРОВАННОЕ ФОТОННОЕ ЭХО В МОЛЕКУЛЯРНОМ ГАЗЕ

Н.Н. Рубцова, Д.В. Ледовских, Е.Б. Хворостов, В.Г. Гольдорт

Аннотация

Исследованы сигналы затухания свободной поляризации на фоне нестационарных оптических нутаций, фотонное эхо и стимулированное фотонное эхо, сформированные в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ методом штарковского переключения уровней. На основе кинетики сигналов фотонного эха и стимулированного фотонного эха получены значения однородного уширения Γ/p при разных давлениях газа.

Ключевые слова: затухание свободной поляризации, фотонное эхо, стимулированное фотонное эхо, нестационарные оптические нутации, однородное уширение спектральной линии, газ, штарковское переключение уровней.

1. Объект исследования

В эксперименте использован вращательный переход $R(4,3)$ колебательной полосы 0–1 моды ν_3 газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$, энергетические уровни перехода вырождены по магнитному квантовому числу, нижний имеет 9 подуровней, верхний – 11. Дипольные моменты в основном и возбужденном состояниях разные. Эффект Штарка на этом переходе – линейный, и электрическое поле сдвигает уровни основного и возбужденного состояний на величину:

$$\Delta W_i = -d_i E_{\text{St}} \frac{M K_i}{J_i(J_i + 1)}, \quad i = 0, 1. \quad (1)$$

Здесь J_0, J_1 – квантовые числа углового момента основного и возбужденного состояний соответственно; K_0, K_1 – квантовые числа проекции углового момента на ось симметрии молекулы в основном и возбужденном состояниях соответственно; d_0, d_1 – дипольные моменты основного и возбужденного состояний соответственно; E_{St} – напряженность штарковского поля; M – магнитное квантовое число. Таким образом, электрическое поле изменяет частоту перехода на величину $\Delta\omega_M$, различную для каждого магнитного подуровня:

$$\Delta\omega_M = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{d_0 K}{J_0(J_0 + 1)} - \frac{d_1 K}{J_1(J_1 + 1)} \right) M E_{\text{St}} \quad (2)$$

Эксперименты с затуханием свободной поляризации проводились при поляризации возбуждающего излучения, параллельной штарковскому полю, поэтому правила отбора $\Delta M = 0$, разрешено 9 переходов.

В экспериментах с фотонным эхом и стимулированным фотонным эхом поляризация возбуждающего излучения была перпендикулярна штарковскому полю, правила отбора $\Delta M = +1$, разрешено 18 переходов.

2. Формирование сигнала затухания свободной поляризации, фотонного эха и стимулированного фотонного эха

Полуширина доплеровского контура газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ при комнатной температуре составляет 39 МГц. Спектральная ширина группы молекул, которые взаимодействуют с лазерным излучением, значительно ниже; она определяется частотой Раби и составляет менее 1 МГц при интенсивности лазерного излучения 3.2 Вт/см^2 .

Для формирования сигналов затухания свободной поляризации, фотонного эха и стимулированного фотонного эха применялся метод штарковского переключения уровней. Излучение лазера было непрерывным; для формирования сигналов молекулы вводились или выводились из резонанса эффектом Штарка.

В формировании когерентных откликов принимают участие две группы молекул: первая группа молекул с нулевой скоростью движения вдоль луча лазера, и вторая группа молекул, с такой проекцией скорости на направление волнового вектора излучения, что ее доплеровский сдвиг равен штарковскому сдвигу (формула (2)).

Таким образом, молекулы второй группы после включения электрического поля попадают в резонанс и формируют сигнал нестационарных оптических нутаций. Молекулы первой группы, вышедшие из резонанса, испускают сигнал затухания свободной поляризации [1]. Этот сигнал можно наблюдать, если штарковский импульс достаточно длинный, а интенсивность лазерного излучения мала. В момент прохождения излучения через рабочую ячейку с газом эти два явления наблюдаются одновременно. Во время выключения электрического поля группы молекул меняются ролями, то есть молекулы первой группы попадают в резонанс и формируют сигнал нестационарных оптических нутаций, а молекулы второй группы, вышедшие из резонанса, испускают сигнал затухания свободной поляризации. Процессы формирования фотонного эха и стимулированного фотонного эха рассмотрены ниже.

3. Физика процессов

Затухание свободной поляризации – это уменьшение поляризации среды после прекращения действия возбуждающего импульса резонансного излучения. Существуют две качественно различные причины, вызывающие затухание макроскопической поляризации среды. Процессы необратимой релаксации, которые приводят к распаду состояний или сбою фаз (спонтанное испускание, неупругие и упругие столкновения и т. д.), определяют однородное уширение спектральных линий. Различие собственных частот ω_{ab} , обусловленное эффектом Доплера при тепловом движении атомов и молекул, – это неоднородное уширение.

Так как в газах преобладает неоднородное уширение, макроскопическая поляризация успевает исчезнуть из-за дефазировки излучателей с разными собственными частотами прежде, чем релаксирует когерентное возбуждение отдельных излучателей. Важно то, что этот механизм затухания является обратимым.

Первый возбуждающий импульс переводит атомы в возбужденное когерентное состояние, в котором все элементарные диполи связаны по фазе (в оптимальном случае площадь указанного импульса равна $\pi/2$). По окончании воздействия этого импульса наведенная макроскопическая поляризация среды постепенно уменьшается. Происходит расфазировка колебаний диполей.

Под действием второго импульса доплеровские фазы осцилляторов изменяют знак, и расфазировка сменяется фазировкой (π -импульс). Когда все осцилляторы оказываются вновь полностью сфазированными, формируется эхо-импульс когерентного излучения [2].

Процесс формирования стимулированного фотонного эха аналогичен формированию фотонного эха. Стимулированное фотонное эхо формируется тремя импульсами. Так же, как в случае фотонного эха, первый возбуждающий импульс создает поляризацию среды. Второй преобразует эту поляризацию в разность населенностей. Третий делает обратное преобразование и изменяет знаки фаз.

4. Затухание свободной поляризации

В проведенном эксперименте напряженность электрического поля была равна 160 В/см; давление газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ – 1 мТорр, интенсивность излучения лазера – 0.14 Вт/см², диаметр пучка – 3 см, поляризация лазерного излучения была параллельной электрическому полю, что соответствует правилу отбора $\Delta M = 0$. Таким образом, было разрешено 9 переходов, но вклад в сигнал давали лишь 8, так как переход $M = 0$ не смещается электрическим полем (формула(2)). Сигнал затухания свободной поляризации представляет собой интерференцию излучений этих переходов - биения на фоне нестационарных оптических нутаций [1, 3].

В данном эксперименте сигнал собственного излучения среды регистрировался путём гетеродинирования, поэтому сигнал затухания свободной поляризации пропорционален напряжённости поля этого излучения и лазерного поля E_0 :

$$E = E_0 Q \sum \cos(\delta M E_{\text{St}}) = E_0 Q \frac{\sin(9\delta E_{\text{St}} t/2)}{\sin(\delta E_{\text{St}} t/2)}, \quad (3)$$

где Q – интенсивность переходов, которые приняты равными для всех M ;

$$\delta = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{d_0 K}{J_0(J_0 + 1)} - \frac{d_1 K}{J_1(J_1 + 1)} \right). \quad (4)$$

Ширина и период биений обратно пропорциональны напряженности электрического поля, создающего эффект Штарка [3]:

$$T = \frac{2\pi}{\delta E_{\text{St}}}, \quad (5)$$

$$\Delta T = \frac{2\pi}{9\delta E_{\text{St}}}, \quad (6)$$

где ΔT – ширина интерференционного пика; T – период биений.

При увеличении мощности излучения сигнал затухания свободной поляризации подавляется сигналом нестационарных оптических нутаций, что подтверждается экспериментом.

5. Описание эксперимента

Излучение лазера интенсивностью 3.2 Вт/см² проходило трижды через ячейку с газом (длина ячейки 20 см) и штарковскими электродами (расстояние между электродами 3 см), на которые подавались импульсы с генератора. Длительность и задержку времени между импульсами можно было изменять. При включении и выключении электрического поля формировался когерентный отклик среды, который регистрировался фотоприемником. Сигналы с фотоприемника и генератора электрических импульсов подавались на цифровой осциллограф, записывались и обрабатывались на компьютере. В экспериментах с фотонным эхом и стимулированным фотонным эхом поляризация возбуждающего излучения была ориентирована перпендикулярно электрическому (штарковскому) полю. Такая схема

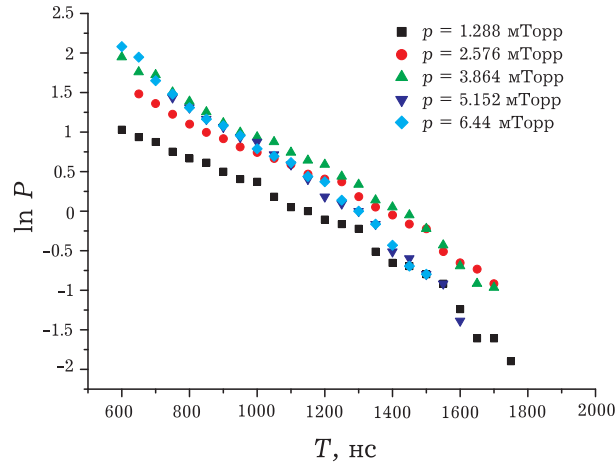


Рис. 1. Затухание фотонного эха при разных задержках электрических импульсов и разных давлениях газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$

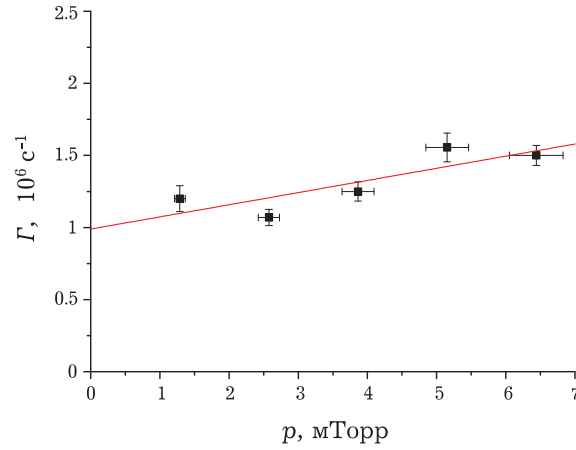


Рис. 2. Зависимость однородного уширения линии Γ от давления, полученная методом фотонного эха в области малых задержек T

позволила значительно увеличить амплитуды сигналов фотонного эха и стимулированного фотонного эха, так как в этом случае правила отбора $\Delta M = +1$ и количество разрешенных переходов возросло до 18.

На рис. 1 показана кинетика затухания фотонного эха при разных давлениях газа. Неэкспоненциальность зависимости фотонного эха от задержки между возбуждающими импульсами наблюдается для всех исследованных давлений газа; видно также увеличение скорости затухания с ростом давления.

По соотношению $E_{PE} \sim \exp(-2\Gamma T)$ [5] (где E_{SPE} – напряженность электрического поля электромагнитной волны стимулированного фотонного эха) получена зависимость однородной ширины линии Γ от давления в области малых задержек, представленная на рис. 2.

Уширение $\Gamma/p = 13.4 \text{ МГц/Торр}$ связано с неупругими столкновениями и согласуется со скоростью вращательной релаксации, полученной методом инфракрасно-микроволнового резонанса $\Gamma/p = 15.1 \text{ МГц/Торр}$ в работе [4].

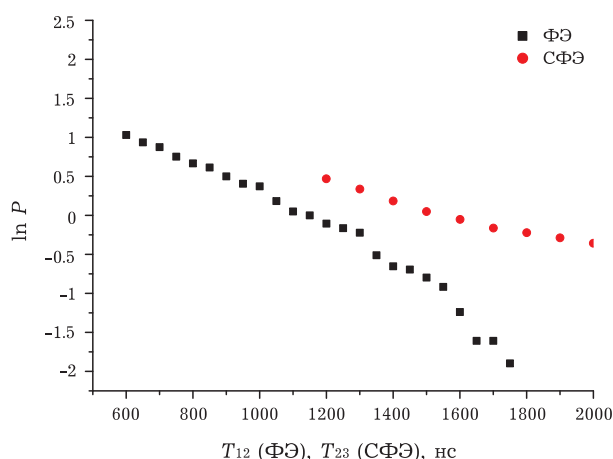


Рис. 3. Кинетика фотонного эха и стимулированного фотонного эха при давлении газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$, равном 1.288 мТорр

На рис. 3 приведена кинетика фотонного эха и стимулированного фотонного эха при одном и том же давлении; видно, что сигнал стимулированного фотонного эха затухает медленнее.

Из соотношения $E_{SPE} \sim \exp(-\Gamma T_{23})$ [5] (где E_{SPE} – напряженность электрического поля электромагнитной волны стимулированного фотонного эха, T_{23} – время задержки между вторым и третьим электрическими импульсами) получена зависимость однородного уширения Γ от давления методом стимулированного фотонного эха: $\Gamma/p = 29.6$ МГц/Торр. Это значение согласуется с константой столкновительной релаксации, измеренной методом задержанных оптических нутаций, равной 30.3 МГц/Торр, а также с однородным уширением линии $^{13}\text{CH}_3\text{F}$, измеренным методом насыщенного поглощения, равным 33.6 МГц/Торр.

6. Выводы

Из проведенных исследований можно заключить следующее. Сигнал затухания свободной поляризации имеет вид биений сигналов, сформированных переходами, с различными магнитными квантовыми числами M . Контраст биений падает с увеличением интенсивности возбуждающего лазерного излучения. Для сигналов фотонного эха кинетика затухания неэкспоненциальна. Найденное методом фотонного эха при малых задержках уширение линии $\Gamma/p = 13.4$ МГц/Торр связано с неупругими столкновениями и согласуется со скоростью вращательной релаксации, полученной методом двойного инфракрасно-микроволнового резонанса. Найденная методом стимулированного фотонного эха константа скорости релаксации согласуется с константой релаксации, измеренной методом задержанных оптических нутаций, а также с однородным уширением линии $^{13}\text{CH}_3\text{F}$, измеренным методом насыщенного поглощения.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проекты № 07-02-00091, 10-02-00071), а также Программы ОФН РАН «Фундаментальная оптическая спектроскопия и ее приложения» (грант № 9.2).

Summary

N.N. Rubtsova, D.V. Ledovskikh, E.B. Khvorostov, V.G. Goldort. Free Polarization Decay, Photon Echo and Stimulated Photon Echo in Molecular Gas.

The signals of free polarization decay on a background of transient optical nutations, as well as the photon echo and the stimulated photon echo, which are generated in $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ gas by the method of Stark switching of levels, are investigated. The values of the homogeneous broadening Γ/p are obtained for different gas pressures on the basis of the kinetics of the photon echo and the stimulated photon echo signals.

Key words: free polarization decay, photon echo, stimulated photon echo, transient optical nutations, homogeneous broadening of spectral line, gas, Stark switching of levels.

Литература

1. *Ледовских Д.В., Рубцова Н.Н., Хворостов Е.Б.* Сигналы затухания свободной поляризации в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ // Учен. зап. Казан. ун-та. Сер. Физ.-матем. науки. – 2008. – Т. 150, кн. 2. – С. 166–172.
2. *Прохоров А.М.* Физическая энциклопедия. Т. 5. – М.: Большая рос. энцикл., 1998. – С. 354–355.
3. *Foster K.L., Stenholm S., Brewer R.G.* Interference pulses in optical free induction decay // Phys. Rev. A. – 1974. – V. 10, No 6. – P. 2318–2324.
4. *Jetter H., Pearson E.F., Norris C.L., McGurk J.C., Flygare W.H.* Time-resolved infrared-microwave double resonance in $^{13}\text{CH}_3\text{F}$: Theory and experiment // J. Chem. Phys. – 1973. – V. 59, No 4. – P. 1796–1804.
5. *Shoemaker R.L.* Coherent transient infrared spectroscopy // Laser and Coherence Spectroscopy / Ed. by J.I. Steinfeld. – N. Y.: Plenum Press, 1978. – P. 197–371.

Поступила в редакцию
17.12.09

Гольдорт Вениамин Гершевич – кандидат технических наук, ведущий научный сотрудник отдела квантовой электроники Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, г. Новосибирск.

Ледовских Дмитрий Васильевич – младший научный сотрудник отдела квантовой электроники Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, г. Новосибирск.

E-mail: *D.Ledovskih@mail.ru*

Рубцова Наталия Николаевна – доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник, заведующий лабораторией Отдела квантовой электроники Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, г. Новосибирск.

E-mail: *rubtsova@isp.nsc.ru*

Хворостов Евгений Борисович – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник отдела квантовой электроники Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, г. Новосибирск.